

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-115424
(43)Date of publication of application : 16.05.1991

(51)Int.Cl. C08G 59/20
C08G 59/62
H01L 23/29
H01L 23/31

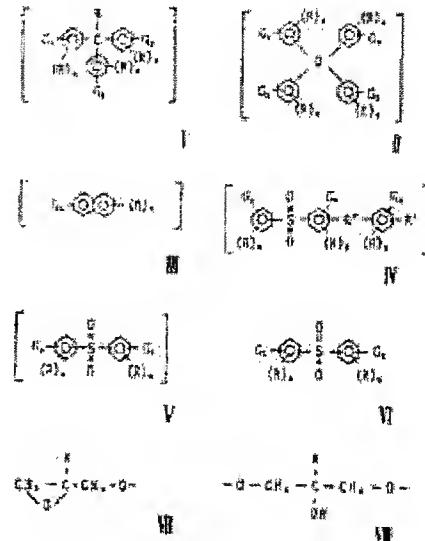
(21)Application number : 01-252125 (71)Applicant : TOSHIBA CORP
(22)Date of filing : 29.09.1989 (72)Inventor : IKETANI HIROTOSHI

(54) EPOXY RESIN COMPOSITION, ITS PRODUCTION AND RESIN-SEALED SEMICONDUCTOR DEVICE

(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain an epoxy resin composition which can give a cured product of high toughness and low stress and can give a high-reliability resin-sealed semiconductor device by mixing an epoxy or phenol compound of a specified structure with another epoxy or phenol compound of a specified structure.

CONSTITUTION: An epoxy resin composition is prepared by mixing at least one epoxy or phenol compound (A) represented by and one of formulas I-IV with at least one other epoxy or phenol compound (B) represented by formula V or VI. The mixing ratio (by weight) is such that the amount of component B is 0.01-100 times, desirably 0.1-2 times as large as that of component A. In formulas I-VI, G1, G2 and G4 which are independent of each other are each formula VII or OH; G3 is formula VII, OH or formula VIII; G5 is formula VII (wherein R is H, a halogen atom or a hydrocarbon group, R' is H, a halogen atom, a hydrocarbon group, $-SO_2-$ or a like group; R'' is a hydrocarbon group or $-SO_2-$ and Q is a 2C or higher hydrocarbon group).



⑪ 公開特許公報 (A)

平3-115424

⑤Int.Cl.⁵C 08 G 59/20
59/62
H 01 L 23/29
23/31

識別記号

NHQ
N J F

府内整理番号

8416-4 J
8416-4 J

④公開 平成3年(1991)5月16日

6412-5F H 01 L 23/30

審査請求 未請求 請求項の数 5 (全19頁)

R

⑥発明の名称 エポキシ樹脂組成物、その製造方法および樹脂封止型半導体装置

⑦特願 平1-252125

⑧出願 平1(1989)9月29日

⑨発明者 池谷 裕俊 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合研究所内

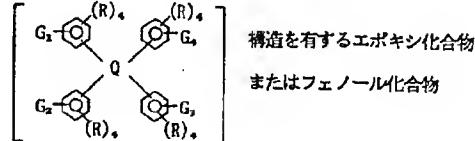
⑩出願人 株式会社東芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

⑪代理人 弁理士 則近 勝佑 外1名

明細書

式(2)

1. 発明の名称

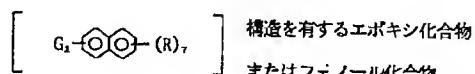
エポキシ樹脂組成物、その製造方法および
樹脂封止型半導体装置

2. 特許請求の範囲

(1) 成分(A)：次式〔1〕～〔4〕で表わされる化

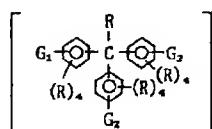
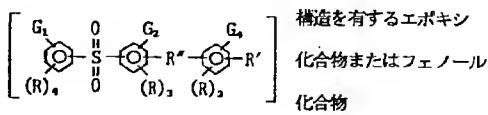
合物の少なくとも1種と、

式(3)

成分(B)：次式〔5〕、〔6〕で表わされる化
合物の少なくとも1種とを含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成
物。

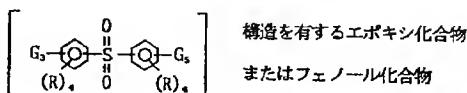
式(4)

(A)：式〔1〕

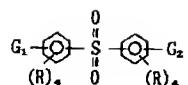
構造を有するエポキシ化合物
またはフェノール化合物

(以下余白)

(B)：式〔5〕



式 [6]



で表わされるエポキシ化合物またはフェノール化合物

上記式において、

各 $\text{G}_1, \text{G}_2, \text{G}_3$ はそれぞれ個別に $\text{CH}_2 - \overset{\text{R}}{\underset{0}{\text{C}}} - \text{CH}_2 - \text{O} -$

基または $\text{HO} -$ 基を表わし、各 G_4 はそれぞれ個別に $\text{CH}_2 - \overset{\text{R}}{\underset{0}{\text{C}}} - \text{CH}_2 - \text{O} -$ 基、 $\text{HO} -$ 基または

$\text{---} \text{O} - \text{CH}_2 - \overset{\text{R}}{\underset{0}{\text{C}}} - \text{CH}_2 - \text{O} -$ 基を表わし、

各 G_5 は $\text{---} \text{O} - \text{CH}_2 - \overset{\text{R}}{\underset{0}{\text{C}}} - \text{CH}_2 - \text{O} -$ 基を表わす。

また各 R はそれぞれ個別に水素、ハロゲン、炭素原子 1 個以上の炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基を表わし、各 R' はそれぞれ個別に水素、ハロゲン、炭素原子 1 個以上の炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、 $-\text{SO}_2-$ 基を

⑤ 請求項①乃至③のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物で半導体デバイスが封止されることを特徴とする樹脂封止型半導体装置。

3. 発明の詳細な説明

〔発明の目的〕

〔産業上の利用分野〕

本発明は耐熱性、高韌性、低応力性の硬化物を与えるエポキシ樹脂組成物、及びそれを用いた高信頼性の樹脂封止型半導体装置に関する。

〔従来の技術〕

エポキシ樹脂組成物は集積回路 (IC)、大規模集積回路 (LSI)、トランジスタなどの半導体部品や電子部品その他の部品を封止するため広く用いられている。従来、半導体などの封止に用いられているエポキシ樹脂組成物は、主成分としてクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、硬化剤としてノボラック型フェノール樹脂を含有するものである。このようなエポキシ樹脂組成物の硬化物からなる封止樹脂には、耐湿性、低応力性などの基本的な特性はもとより、プリント基板に

表わし、各 R' はそれぞれ個別に炭素原子 1 個以上の炭化水素基、 $-\text{SO}_2-$ 基を表わし、各 Q は炭素原子 2 個以上の炭化水素基を表わす。

② 請求項①で示した式 [5] 及び [6] で表わされる化合物から選ばれた少なくとも 1 種のエポキシ化合物と、少なくとも 1 種のフェノール化合物とを含有することを特徴とする請求項①記載のエポキシ樹脂組成物。

③ 請求項①で示した式 [5] 及び [6] で表わされる化合物のエポキシ基とフェノール水酸基とをあらかじめ反応させてなる成分 (B) を用いてることを特徴とする請求項①記載のエポキシ樹脂組成物。

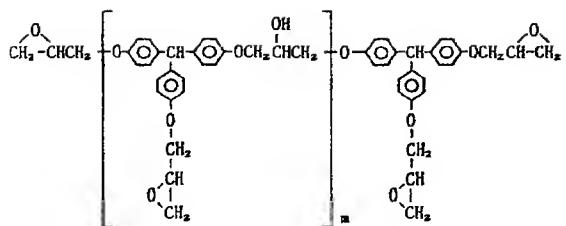
④ 請求項①で示した式 [5] 及び [6] で表わされる化合物から選ばれた少なくとも 1 種のエポキシ化合物と、少なくとも 1 種のフェノール化合物とを相溶させた後、成分 (A) と混合することを特徴とする請求項①記載のエポキシ樹脂組成物の製造方法。

実装する際のソルダリングに耐える耐熱性が要求される。

このソルダリングは、ハンダフローまたはリフローによってハンダ付けする方法が主流となってきている。ハンダフローまたはリフロー時に封止樹脂は 200°C 以上、時には 300°C 以上の温度で短時間曝されるため、これらの条件でクラックやその他の故障を起きないことが必要である。しかし、従来のエポキシ樹脂組成物の硬化物は脆く、韌性及び耐熱性が不充分なため、ハンダフローまたはリフローの際にクラックを発生しやすく、充分な信頼性が得られない欠点があった。

一方、従来よりも耐熱性に優れた硬化物を与えるエポキシ樹脂組成物が提案されている。たとえば特開昭61-172356号公報及び特開昭62-184012号公報などには、主成分として次式

(以下余白)



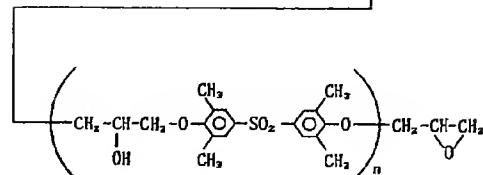
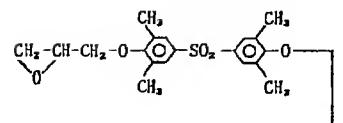
(式中、 m は 0、1 又は 2)

で表わされる化合物を用いた耐熱性のエポキシ樹脂組成物が開示されている。

しかし、これらのエポキシ樹脂組成物は、耐熱性の改善には有効であるものの、脆いために韌性が不充分で、半導体封止樹脂に用いた場合には、信頼性が満足できるものではなかった。

また他の例として、特開昭63-199218号公報には、半導体封止用エポキシ樹脂組成物に、一般式

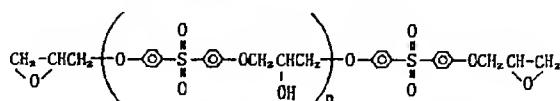
(以下余白)



(式中の n は 0 ~ 2 の数である)

で表わされるエポキシ樹脂を用いる技術が開示されている。

同様に特開昭63-68628号公報には、電子部品封止用エポキシ樹脂成形材料に、一般式



で表わされるエポキシ樹脂を用いる技術が開示されている。しかしこれらのエポキシ樹脂組成物は、耐熱性が不十分で、上記問題点を解決するものではなかった。

(発明が解決しようとする課題)

以上のように、従来のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、韌性、耐熱性などの特性を全て満足するものではなく、したがってそれを用いて得られる樹脂封止型半導体装置の信頼性が低いという問題点があった。

本発明は以上のような問題点に鑑みなされたもので、高韌性、耐熱性の硬化物を与えるエポキシ樹脂組成物、及びそれを用いた高信頼性の樹脂封止型半導体装置を提供することを目的とする。

(発明の構成)

(課題を解決するための手段と作用)

上記目的を達成するために種々検討した結果、次に示すエポキシ樹脂組成物が優れた特性を有しており、それを用いることによって高信頼性の樹脂封止型半導体装置が得られることを見出した。

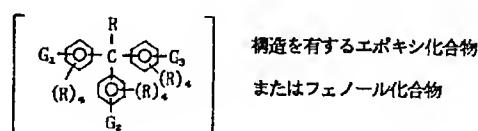
すなわち、本発明のエポキシ樹脂組成物は、(A)成分：次式[1]～[4]で表わされる化合物の少なくとも 1 種と、

(B)成分：次式[5]、[6]で表わされる化合物の

少なくとも 1 種と

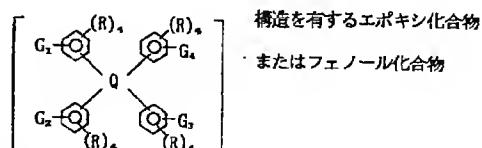
を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物である。

(A)：式[1]



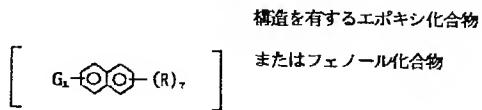
構造を有するエポキシ化合物
またはフェノール化合物

式[2]



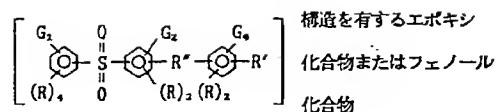
構造を有するエポキシ化合物
またはフェノール化合物

式[3]



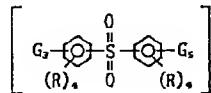
構造を有するエポキシ化合物
またはフェノール化合物

式 [4]



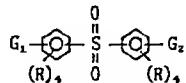
構造を有するエポキシ
化合物またはフェノール
化合物

(B) : 式 [5]



構造を有するエポキシ化合物
またはフェノール化合物

式 [6]



で表わされるエポキシ化合物またはフェノー
ル化合物

上記式において、

各G₁, G₂, G₃はそれぞれ個別に $\text{CH}_2-\overset{\text{R}}{\underset{\text{O}}{\text{C}}}-\text{CH}_2-\text{O}-$
基またはHO-基を表わし、各G₄はそれぞれ個別に

成物である。

また本発明は、前記式[5]及び[6]で表わ
される化合物のエポキシ基とフェノール水酸基と
をあらかじめ反応させてなる成分(B)を用いてな
ることを特徴とするエポキシ樹脂組成物である。

また本発明は、前記式[5]及び[6]で表わ
される化合物から選ばれた少なくとも1種のエポ
キシ化合物と、少なくとも1種のフェノール化合物
とを相溶させた後、成分(A)と混合することを
特徴とするエポキシ樹脂組成物の製造方法である。

また本発明は、前述のエポキシ樹脂組成物で半
導体デバイスが封止されてなることを特徴とする
樹脂封止型半導体装置である。

以下、さらに具体的に本発明を説明する。

(以下余白)

$\text{CH}_2-\overset{\text{R}}{\underset{\text{O}}{\text{C}}}-\text{CH}_2-\text{O}-$ 基、 HO-基または

$\text{O}-\text{CH}_2-\overset{\text{R}}{\underset{\text{OH}}{\text{C}}}-\text{CH}_2-\text{O}-$ 基を表わし、

各G₁は $\text{O}-\text{CH}_2-\overset{\text{R}}{\underset{\text{OH}}{\text{C}}}-\text{CH}_2-\text{O}-$ 基を表わす。

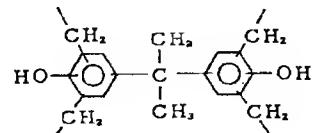
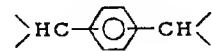
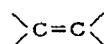
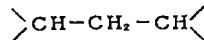
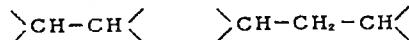
また各Rはそれぞれ個別に水素、ハロゲン、メ

チル基、メチレン基、メチン基などの炭素原子1
個以上の炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基を表
わし、各R'はそれぞれ個別に水素、ハロゲン、メ
チル基、メチレン基、メチン基などの炭素原子1
個以上の炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基，

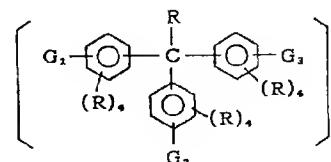
SO_2- 基を表わし、各R"はそれぞれ個別にメ
チレン基、メチン基など炭素原子1個以上の炭化
水素基、 SO_2- 基を表わし、各Qは炭素原子2
個以上の炭化水素基を表わす。

また本発明は、前記式[5]及び[6]で表わ
される化合物から選ばれた少なくとも1種のエポ
キシ化合物と、少なくとも1種のフェノール化合物
とを含有することを特徴とするエポキシ樹脂組

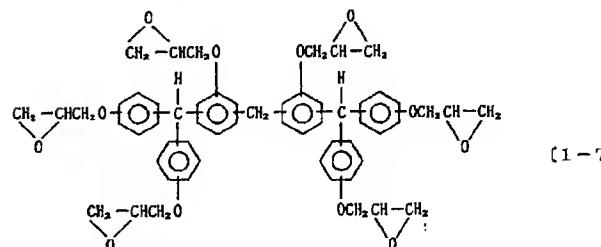
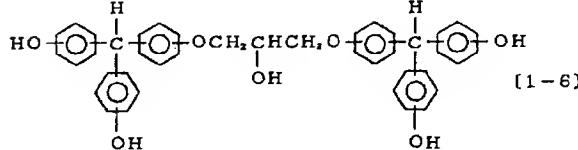
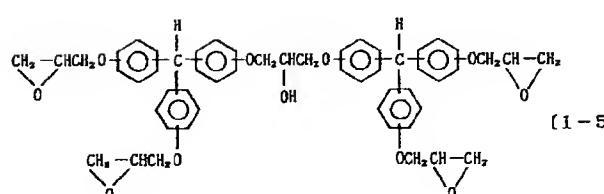
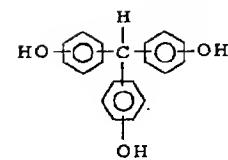
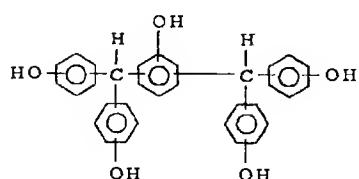
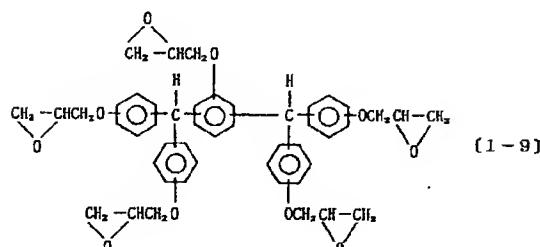
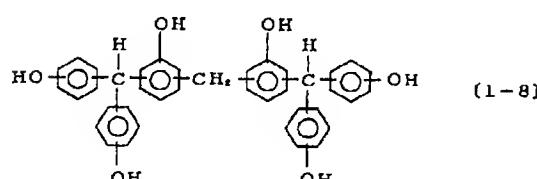
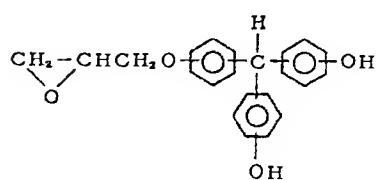
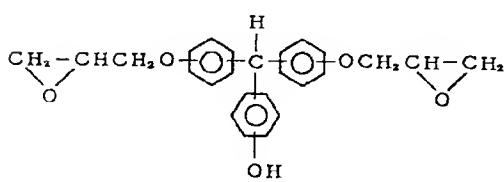
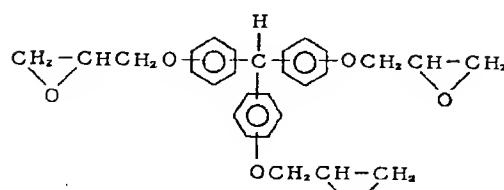
本発明で用いられる式[2]で表わされる化合物
において、Qの具体例としては以下のようないもの
が挙げられる。



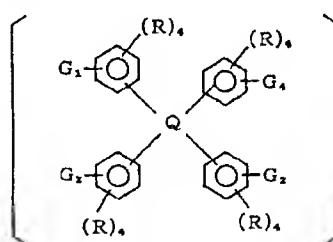
本発明で用いられる



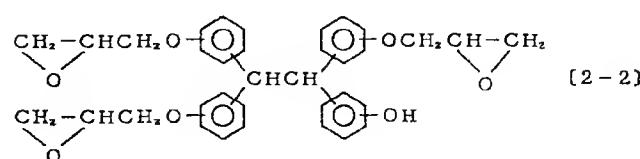
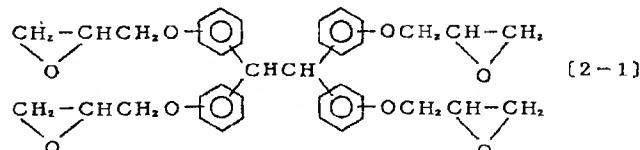
構造を有するエポキシ化合物またはフェノール化
合物の具体的な例を以下に挙げる。

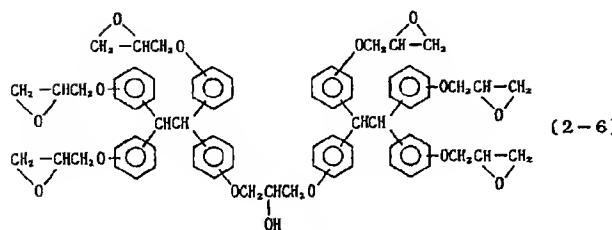
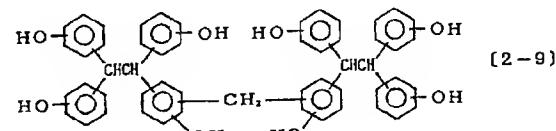
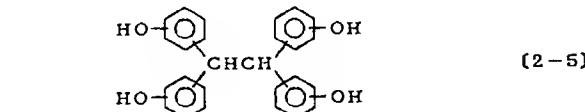
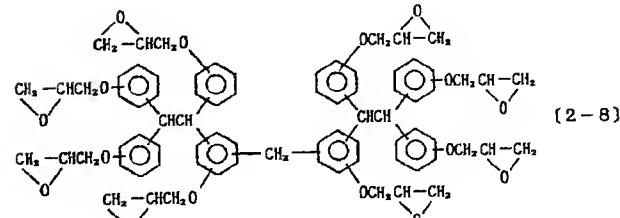
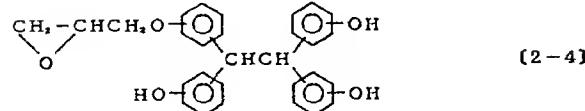
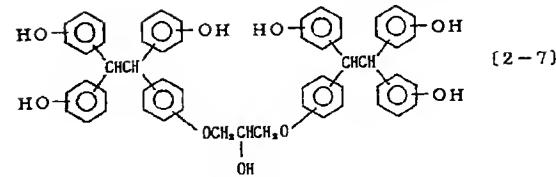
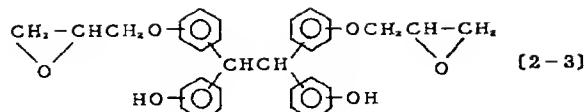


本発明で用いられる

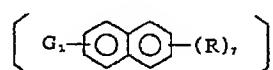


構造を有するエポキシ化合物またはフェノール化
合物の具体的な例を以下に挙げる。

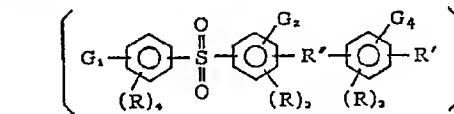
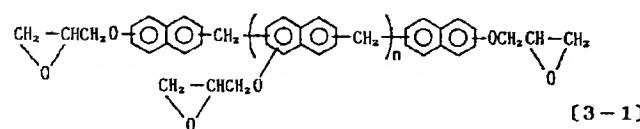




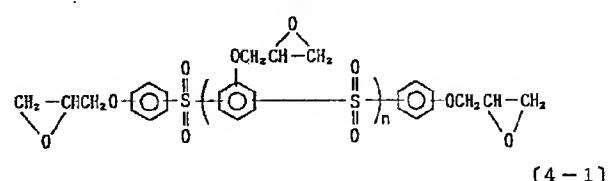
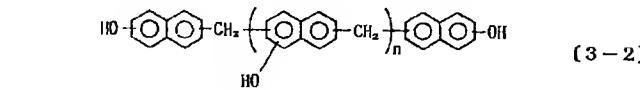
本発明で用いられる



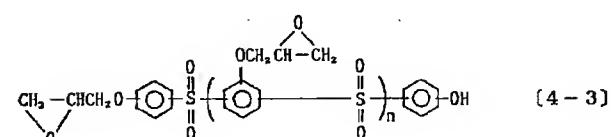
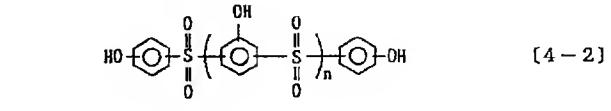
構造を有するエポキシ化合物またはフェノール化合物の具体的な例を以下に挙げる。

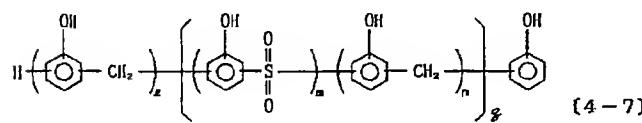
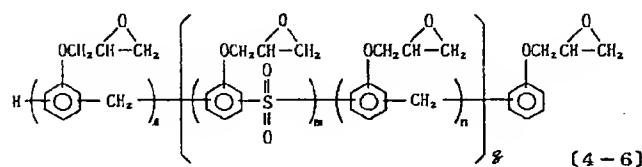
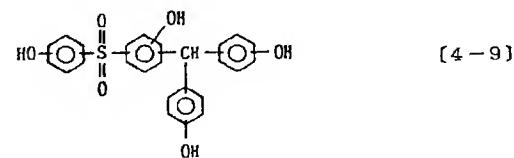
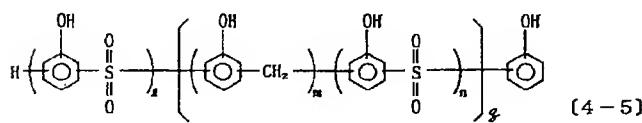
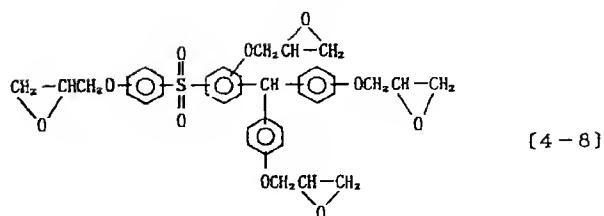
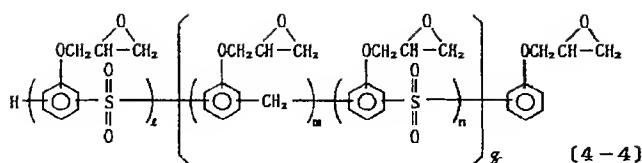


構造を有するエポキシ化合物またはフェノール化合物の具体的な例を以下に挙げる。

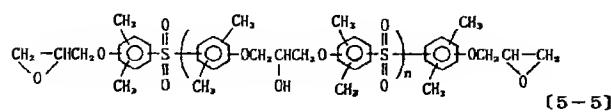
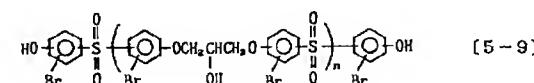
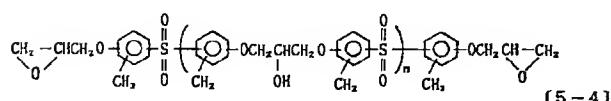
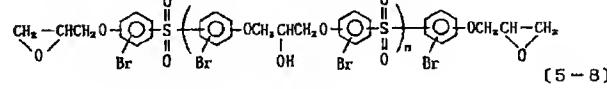
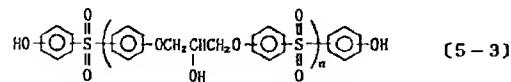
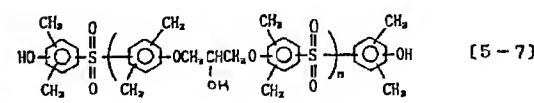
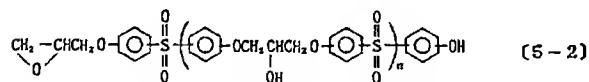
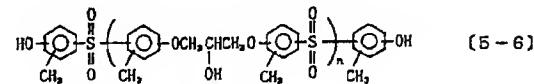
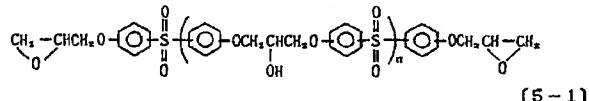


(上記 n は 0 または正の数)

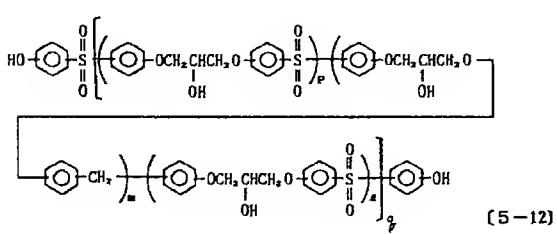
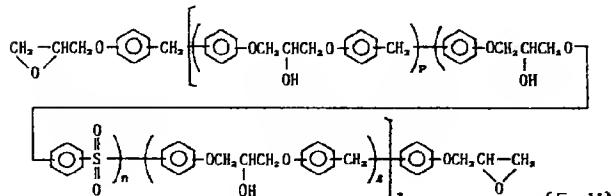
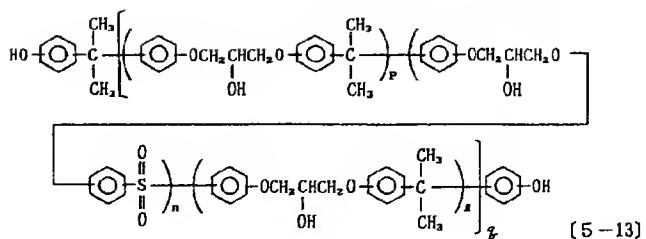
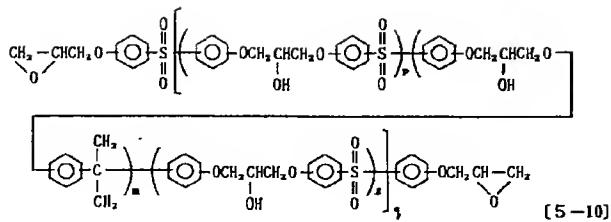




(上記n, m, gはそれぞれ正の数、lは0または正の数)

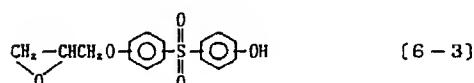
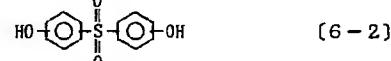
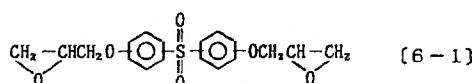


(上記nは正の数)



(上記 n は正の数、 l 、 m 、 p はそれぞれ 0 または正の数、ただし $l = m = p = 0$ を除く。)

本発明で用いられる式 [6] で表わされる化合物は



を基本骨格とする化合物である。

このうち、Rについては、Rの一部が塩素、臭素の場合は、エポキシ樹脂組成物に難燃性を付与することができる。また、Rの一部がアルキル基の場合や、特にフッ素、フッ化アルキル基の場合には、エポキシ樹脂組成物に撥水性を付与することができ、組成物の吸水率、吸湿率が低下し、耐湿性が向上する。エポキシ樹脂組成物の吸水率が低い場合、表面実装用の半導体デバイスや電子部品の封止に用いた時に効果的である。すなわち、表面実装用の部品をゾルダリングする際に、部品に加わった熱によって封止樹脂が吸湿していた水分が急激に気化して膨張し、そのため封止樹脂に大きな応力が発生し、クラックなどが起きやすくなるからである。

上記式 [5-1]、[5-3]～[5-9]において、 n は正の数であればよいが、好ましくは $n > 2$ 、より好ましくは $n \geq 4$ である。

本発明の作用によれば上記 n の影響は $n = 0$ のときに改善効果が最も小さく、 n が増大するにつれて改善効果が顕著に向上する。特に n が 2 を

超えると大きな改善効果が得られる。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、前記成分(A)及び成分(B)を含むことを特徴とする。これらの組合せによって、耐熱性、低応力性、高温での韌性が優れた硬化物が得られ、それを用いた樹脂封止型半導体装置の信頼性が向上する。

本発明において、成分(A)と成分(B)との配合比に関しては、成分(B)が、成分(A)の 0.01～100 倍 (重量比) の範囲にあることが好ましい。これは、0.01 倍未満では硬化物の韌性が低下しやすくなり、100 倍を超えると硬化物の耐熱性が低下しやすくなるためである。より好ましくは 0.1～10 倍の範囲である。更に好ましくは 0.1～2 倍の範囲である。

本発明のエポキシ樹脂組成物においては、成分(A)及び成分(B)からなる組合せが可能であるが、成分(A)群に含まれるエポキシ化合物及びフェノール化合物がともに含有されていることが好ましい。

なお、成分(A)で選択して用いる化合物のなか

にフェノール化合物が含有されていない場合は、成分(A)以外に、1分子中に3個以上のフェノール性水酸基を有する化合物を併用することが好ましい。

同様に、成分(A)で選択して用いる化合物のなかにエポキシ化合物が含有されていない場合は、成分(A)以外に、1分子中に3個以上のエポキシ基を有する化合物を併用することが好ましい。

成分(A)以外に併用することができるフェノール化合物としては、フェノール、クレゾール、キシレノール、ヒドロキノン、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールFなどのフェノール類とアルデヒド類を縮合反応させて得られるノボラック型フェノール樹脂、レゾール型フェノール樹脂、フェノールアラルキル樹脂、ポリヒドロキシスチレンなどが挙げられる。

成分(A)以外に併用することができるエポキシ化合物としては、上記ノボラック型フェノール樹脂のグリシジルエーテル、フェノールアラルキル樹脂のグリシジルエーテル、ポリヒドロキシチ

レンのグリシジルエーテルなどのグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、テトラグリシジルアミノジフェニルメタンなどのグリシジルアミン型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、複素環式エポキシ樹脂などが挙げられる。

本発明のエポキシ樹脂組成物において、エポキシ樹脂と硬化剤の配合比に関しては、全フェノール性水酸基と全エポキシ基の当量比が0.5~1.5の範囲内にあるように配合することが望ましい。これは、前記範囲外では反応が充分に起こりにくくなり、硬化物の特性が劣化しやすくなるためである。

エポキシ樹脂の硬化剤としては、フェノール性水酸基を有する化合物が好ましいが、他の硬化剤として酸無水物硬化剤、アミン系硬化剤などを併用してもよい。

本発明のエポキシ樹脂組成物が、硬化反応を生起して硬化物になる過程において、各成分の組合せに応じて次のような反応が起こる。

①成分(A)のエポキシ化合物と成分(A)のフェノール化合物との反応

②成分(A)のエポキシ化合物と成分(B)のフェノール化合物との反応

③成分(A)のフェノール化合物と成分(B)のエポキシ化合物との反応

④成分(B)のエポキシ化合物と成分(B)のフェノール化合物との反応

である。

更に他のエポキシ樹脂、フェノール樹脂を併用した場合には、次のような反応が起こる。

⑤成分(A)のエポキシ化合物と併用フェノール樹脂との反応

⑥成分(B)のエポキシ化合物と併用フェノール樹脂との反応

⑦成分(A)のフェノール化合物と併用エポキシ樹脂との反応

⑧成分(B)のフェノール化合物と併用エポキシ樹脂との反応

である。

本発明では、これらの反応によって成分(A)で形成される3次元硬化網目中に、成分(B)の2官能化合物が組込まれることによって所期の効果が得られる。

この場合、成分(A)による3次元硬化網目は、前記反応①、⑤、⑦によって生ずる。また、成分(B)の3次元硬化網目への組込みは、前記反応②、③、⑥、⑧によって行なわれる。このうち、反応②、③は成分(A)への直接反応による成分(B)の組込みであり、一方反応⑥、⑧は他のエポキシ樹脂又はフェノール樹脂との反応を経由しての3次元網目への成分(B)の組込みである。後者の場合、併用されたエポキシ樹脂、フェノール樹脂は、反応⑥、⑧によって成分(B)と反応すると同時に、反応⑤、⑦によって成分(A)と反応するため、成分(B)の成分(A)の3次元網目への組込みが行なわれる。

以下、本発明における成分(A)と成分(B)との組合せに応じて、起こり得る反応についてより詳細に説明する。

成分(A)、(B)の組合せが、(A)及び(B)のエボキシ化合物のみの場合、又は(A)及び(B)のフェノール化合物のみの場合には、もっぱら前述した併用樹脂との反応により組込みがなされる。

成分(A)、(B)の組合せが、(A)及び(B)のエボキシ化合物並びに(A)のフェノール化合物の場合には、反応①、③によって、他の樹脂を併用したときは反応⑤、⑥、⑦も加わって、(B)の組込みがなされる。

成分(A)、(B)の組合せが、(A)及び(B)のフェノール化合物並びに(A)のエポキシ化合物の場合には、反応①、②によって、他の樹脂を併用したときは反応⑤、⑦、⑧も加わって、(B)の組合せがなされる。

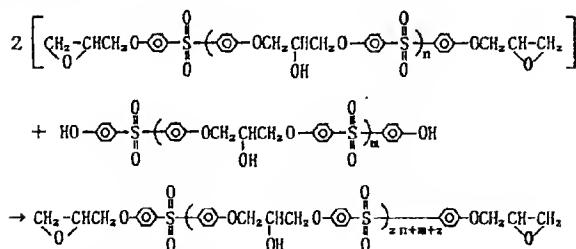
成分(A)、(B)の組合せが、(A)及び(B)のエボキシ化合物並びに(B)のフェノール化合物の樹合には、反応②、④によって、他の樹脂を併用したときは反応⑤、⑥、⑧も加わって、(B)の組合みがなされる。

成分(A)、(B)の相合せが、(A)及び(B)のフ

以下に、より具体的にこれらの反応による生成物を示す。

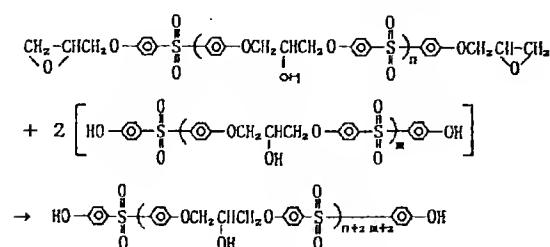
例えば、エポキシ基がフェノール性水酸基の2倍の場合、

として



のような反応が起こる。

逆にフェノール性水酸基がエポキシ基の2倍の
場合、主として



エノール化合物並びに(B)のエポキシ化合物の場合には、反応③、④によって、他の樹脂を併用したときは反応⑥、⑦、⑧も加わって、(B)の組込みがなされる。

成分(A)、(B)の組合せが、(A)及び(B)のエポキシ化合物並びに(A)及び(B)のフェノール化合物の場合には、反応①、②、③、④によって、他の樹脂を併用したときは反応⑤、⑥、⑦、⑧も加わって、(B)の組みがなされる。

後者の3例では、反応④、すなわち成分(B)のエポキシ化合物と成分(B)のフェノール化合物との反応が生じることが特徴である。この際、副反応を起こさないようにすれば、エポキシ化合物を主成分とするか、又はフェノール化合物を主成分とする、リニアな長い(n の大きい)化合物が生成する。このうちどちらが生成するかは、成分(B)のエポキシ化合物と成分(B)のフェノール化合物との配合比によって決まり、エポキシ基が多い場合にはエポキシ化合物が生成し、逆の場合にはフェノール化合物が生成する。

のような反応が起こる。

このように、エポキシ化合物とフェノール化合物との配合比を変えることによって、種々の分子量を有する生成物が得られる。

前記反応④を利用した場合、次のような効果が得られる。すなわち、たとえば式〔5-1〕、〔5-3〕で表わされる化合物については、短い分子（例えば $n = 0$ ）よりも、長い分子（例えば $n > 2$ ）を用いた場合の方が、その硬化物はより大きな韌性を示す。しかし、最初から長い分子を用いた場合には、組成物の初期粘度が高くなり、組成物の製造が困難となるうえ、成形時には流動性が低下しやすくなるなどの欠点がある。一方、反応④を利用した場合には、最初に短い分子を使用し、反応によって分子を長くするという過程を経る。このため、組成物の初期粘度は低く、製造上、成形上の取扱いやすさが増大する。しかも、反応によって分子が長くなるため、硬化物の韌性に関しては最初から長い分子を用いた場合と同等の効果が得られる。

特に効果が得られるのはエポキシ化合物とフェノール化合物の当量比が1に近い場合である。もし反応④の反応速度を速めるなどして、反応④を他の反応よりも優先させると、nが非常に大きな長い直鎖状の分子ができる。これによりS E M I - I P N (Interpenetrating Polymer Network)的な構造が得られ、硬化物の韌性等の物性が向上する。

以上のような効果を充分に発揮させるためには、反応④の副反応を抑えて、リニアな分子を得ることが重要である。このためには、硬化触媒の選択が重要となる。例えば、硬化触媒としてトリフェニルホスフィンを用いると、副反応が抑えられ、リニアな分子を得るのに有利である。一方、アミン系触媒を用いると、副反応が起きやすいため好ましくない。

反応④は他の反応と同時に生起させてもよいが、他の反応より先行させることが好ましい。具体的には、予め成分(B)のエポキシ化合物とフェノール化合物との溶融混合物を作製しておく方法、更

分(B)のエポキシ化合物を成分(A)またはそれ以外のエポキシ化合物と相溶させておき、成分(B)のフェノール化合物を成分(A)またはそれ以外のフェノール化合物と相溶させておき、これらの相溶物を混合することも好ましい方法である。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、成分(A)及び(B)の化合物群から、それぞれ自由に化合物を選択して組み合わせ、混合して用いることができる。それらの混合の方法は規定されない。混合法としては種々のものがあるが、通常の方法としては、たとえば成分(A)及び(B)の化合物を他の組成成分とともにミキサーで混合した後、熱ロール、ニーダー、混練押出機などを用いて溶融混合する方法が一般的に用いられる。

より好ましい方法は、成分(A)と成分(B)とを他の組成成分とともにミキサーで混合する前に、予め相溶させ、均一な混合物を調製しておく方法である。この混合物は成分(A)、(B)が十分に混ざりあっているため、通常の方法で製造したものに比べ、より優れた特性の製品が得られる。

にその溶融混合物中にトリフェニルホスフィンなどの触媒を加え、予め反応④をある程度進めておく方法などを用いることが好ましい。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、成分(B)で表わされるエポキシ化合物またはフェノール化合物を、それぞれ単独に用いた場合より、両者を併用した場合の方が、好ましい結果が得られる。

両者を併用する時の好ましい配合率は、当量比で1/5~5の範囲、特に好ましくは1を中心として1/2~2の範囲である。

併用した場合には単独で使用する場合に比べ製造が容易となるばかりでなく、得られた製品の特性も改善される。配合比率を調整することによって、併用した場合に単独使用の2倍以上の韌性の向上が達成できる。

併用する方法は、両者を他の成分とともに混合することも可能であるが、両者を予め混合しておいた方が好ましい。特に相溶させておくことが好ましい。

また予め直接両者を相溶させない場合には、成

また特に好ましい方法は、成分(B)のエポキシ化合物とフェノール化合物を使用し、これらを予め相溶または反応させておく方法である。この方法の利点は、これらの化合物を十分に混合できることのほかに、前述の反応④を起こさせること、または起こりやすくすることができる点にある。この方法を用いることによって、通常の方法で製造したものに比べ著しく優れた特性の製品が得られる。

上述の成分(B)の相溶または反応によって得られる生成物を、更に成分(A)と相溶させることによって、全樹脂成分を均一に混合することができ、好ましい結果が得られる。

成分(A)、(B)以外に他のエポキシ樹脂、フェノール樹脂などを用いる場合も全く同様で、これらの樹脂を成分(A)や(B)に予め相溶させておくことにより、好ましい結果が得られる。

相溶させる方法は、各成分を加熱混合する方法が最も好ましいが、溶剤を用いて各成分を溶解させ、その後溶剤を除去して混合物を得る方法も可

能である。

上述のように本発明において種々の製造方法が可能であるが、成分(B)として式[6-2]で表わされる化合物(ビスフェノールS)および式[6-1]で表わされる化合物(ビスフェノールSのジグリシジルエーテル)を用いた場合には、これらの化合物を予め他の成分と溶融または反応させておくことが必要である。そうしないと得られた組成物の均一性が欠け、十分な特性が得られない。その理由を以下に述べる。

式[6-2]で表わされる化合物(ビスフェノールS)は融点が248℃の固体で、エポキシ樹脂に溶けにくいため、封止用成形材料の一般的な製造法、すなわちエポキシ樹脂と硬化剤(ビスフェノールS)の粉体混合物を熱ロールや混練機を用いて100℃前後で混練しても、溶融したエポキシ樹脂にビスフェノールSが溶け込みず、粉体のまま分散するだけであるので、これによって得られるエポキシ樹脂組成物は、特性が不均一かつ貧弱なものである。また混練温度を150℃以上に上げ

ールSのジグリシジルエーテル)も同様であって、これは融点が165℃の固体で、通常の混練温度(100℃前後)では他のエポキシ樹脂やフェノール樹脂硬化剤などに溶けにくいため、封止用成形材料の一般的な製造法、すなわちエポキシ樹脂(ビスフェノールSのジグリシジルエーテルまたはこれと他のエポキシ樹脂)とフェノール樹脂硬化剤の粉体混合物を熱ロールや混練機を用いて100℃前後で混練しても、溶融した樹脂組成物にビスフェノールSのジグリシジルエーテルが溶け込みず、粉体のまま分散するだけであるので、これによって得られるエポキシ樹脂組成物は特性が均一かつ貧弱なものである。また混練温度を150℃以上に上げて溶融を促進しても、十分に溶融しないうちにゲル化が始まり、目的物は得られない。

ビスフェノールSのジグリシジルエーテルを用いて好ましい組成物を得るためにには、予めビスフェノールSのジグリシジルエーテルと他のエポキシ樹脂および/または硬化剤との均一な混合物を調製しておくことが必要である。

て溶融を促進しても、十分に溶融しないうちにゲル化が始まり、目的物は得られない。

ビスフェノールSを用いて好ましい組成物を得るためにには、予めビスフェノールSとエポキシ樹脂および/または他の硬化剤との均一な混合物を調製しておくことが必要である。

均一な混合物を調製する方法は特に限定されないが、例えばビスフェノールSとエポキシ樹脂を溶剤に溶かして混合し、その後、溶剤を除去して、ビスフェノールSとエポキシ樹脂の均一な混合物を得る方法、ビスフェノールSと他の硬化剤(フェノール化合物等)を混合し、熱を加えて相溶させ、均一な溶融混合物を得る方法等がある。

このように予め均一な混合物を調製しておき、それを成形材料の一般的な製造工程、すなわちミキサーによる粉体混合、熱ロール等による混練工程に供給することによって、ビスフェノールSを他の原材料に均一に混合させることができ、好ましい特性の成形材料が得られる。

式[6-1]で表わされる化合物(ビスフェノ

ールSのジグリシジルエーテル)も同様であって、これは融点が165℃の固体で、通常の混練温度(100℃前後)では他のエポキシ樹脂やフェノール樹脂硬化剤などに溶けにくいため、封止用成形材料の一般的な製造法、すなわちエポキシ樹脂(ビスフェノールSのジグリシジルエーテルまたはこれと他のエポキシ樹脂)とフェノール樹脂硬化剤の粉体混合物を熱ロールや混練機を用いて100℃前後で混練しても、溶融した樹脂組成物にビスフェノールSのジグリシジルエーテルが溶け込みず、粉体のまま分散するだけであるので、これによって得られるエポキシ樹脂組成物は特性が均一かつ貧弱なものである。また混練温度を150℃以上に上げて溶融を促進しても、十分に溶融しないうちにゲル化が始まり、目的物は得られない。

このように予め均一な混合物を調製しておき、それを成形材料の一般的な製造工程、すなわちミキサーによる粉体混合、熱ロール等による混練工程に供給することによって、ビスフェノールSのジグリシジルエーテルを他の原材料に均一に混合させることができ、好ましい特性の成形材料が得られる。

ビスフェノールSおよびそのグリシジルエーテルを用いる好ましい方法のひとつは、これら両者を予め溶融混合しておき、それを用いて組成物を調製する方法である。前述のようにビスフェノールSとそのグリシジルエーテルは融点の高い結晶粉体で、他のエポキシ樹脂やフェノール樹脂に相溶しにくく、使用困難な材料であるが、ビスフェ

ノールSとそのグリシジルエーテルを混合し、加熱すると比較的容易に相溶し均一な混合物が得られる。得られた溶融混合物は軟化点が低い樹脂状の固体で、他のエポキシ樹脂やフェノール樹脂その他の硬化剤と容易に相溶するため、成形材料の原料として使いやすい好ましい材料にすることができる。

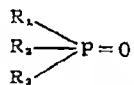
上記混合物において、ビスフェノールSとそのグリシジルエーテルの割合は任意であるが、当量比1/4~4の範囲が好ましい。

また上記混合物は、ビスフェノールSとグリシジルエーテルを単に相溶させるだけでもよいが、前述のように、相溶後両者を反応させてもよい。

本発明の組成物には、必要に応じてエポキシ樹脂と硬化剤の反応を促進する硬化触媒を添加配合することができる。硬化触媒は一般に知られているものを使用できるが、特性の良好なエポキシ樹脂組成物を得るためにには、有機ホスフィン、有機ホスフィンオキシド、有機ホスフィンの配位化合物を用いることが好ましい。

リールホスフィンが好ましく、特にトリフェニルホスフィン、トリス(メチルフェニル)ホスフィン、トリス(メトキシフェニル)ホスフィンなどが好ましい。

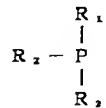
有機ホスフィンオキシドは、次式



(式中、R₁~R₃は水素又は炭化水素基で、炭化水素基の一部は他の原子を含む置換基で置換されていてもよい。なお、R₁~R₃がすべて水素の場合を除く。)

で表わされる化合物である。有機ホスフィンオキシドとしては、具体的にはトリフェニルホスフィンオキシド、トリス(メチルフェニル)ホスフィンオキシド、トリベンジルホスフィンオキシド、トリオクチルホスフィンオキシド、トリシクロヘキシルホスフィンオキシド、ジフェニルエチルホスフィンオキシド、フェニルジメチルホスフィンオキシド、ジフェニルホスフィンオキシド、ジヘ

有機ホスフィンは、次式



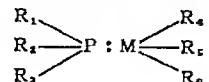
(式中、R₁~R₃は水素又は炭化水素基で、炭化水素基の一部は他の原子を含む置換基で置換されていてもよい。なお、R₁~R₃がすべて水素の場合を除く。)

で表わされる化合物である。

有機ホスフィンとしては、具体的には、トリフェニルホスフィン、トリス(メチルフェニル)ホスフィン、トリス(メトキシフェニル)ホスフィン、(トリス(ヒドロキシフェニル)ホスフィン)トリアチルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、ブチルフェニルホスフィン、ジフェニルホスフィン、フェニルホスフィンなどが挙げられる。更に、R₁が有機ホスフィンを含む置換基である有機ホスフィンとして、例えば1,2-ビス(ジフェニルホスフィノ)エタン、ビス(ジフェニルホスフィノ)メタンなどが挙げられる。これらのうちでも、ア

キシルホスフィンオキシド、フェニルホスフィンオキシド、トリス(クロロフェニル)ホスフィンオキシド、トリス(ヒドロキシフェニル)ホスフィンオキシド、トリス(メトキシフェニル)ホスフィンオキシドなどが挙げられる。これらのうちでも、トリフェニルホスフィンオキシドなどトリアリールホスフィンオキシドが好ましい。

有機ホスフィンの配位化合物は、次式



(式中、R₁~R₃は水素、ハロゲン又は炭化水素基で、炭化水素基の一部は他の原子を含む置換基で置換されていてもよい。なお、R₁~R₃の少くともひとつは炭化水素基である。Mはホウ素又はアルミニウム原子である。)

で表わされる化合物であり、有機ホスフィンとM-R₁、R₂とを反応させることによって容易に得られる。

有機ホスフィンの配位化合物を構成する有機ホ

スフィンとしては、トリフェニルホスフィン、トリス(メチルフェニル)ホスフィン、トリベンジルホスフィン、トリオクチルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、ジフェニルエチルホスフィン、フェニルジメチルホスフィン、ジフェニルホスフィン、ジヘキシルホスフィン、フェニルホスフィン、デシルホスフィン、トリス(クロロフェニル)ホスフィン、トリス(ヒドロキシフェニル)ホスフィン、トリス(メトキシフェニル)ホスフィンなどが挙げられる。これらのうちでも、トリフェニルホスフィンなどトリアリールホスフィンが好ましい。

有機ホスフィンの配位化合物を構成する M.R. R. R. で表わされる化合物としては、水素化ホウ素、水素化アルミニウム、ハロゲン化ホウ素、ハロゲン化アルミニウム、有機ホウ素化合物及び有機アルミニウム化合物がある。このうち有機ホウ素化合物としては、トリフェニルホウ素、トリス(エチルフェニル)ホウ素、トリベンジルホウ素、トリオクチルホウ素、トリシクロヘキシ

ルホウ素、ジフェニルメチルホウ素、フェニルジブチルホウ素、ジフェニルホウ素、ジオクチルホウ素、フェニルホウ素、シクロヘキシルホウ素、トリス(クロロフェニル)ホウ素などが挙げられる。また、有機アルミニウム化合物は、前記ホウ素化合物に対応するアルミニウム化合物、例えばトリフェニルアルミニウムなどが挙げられる。これらの有機ホウ素化合物、有機アルミニウム化合物のうちでも、トリアリール化合物が好ましい。

~~硬化触媒としては~~ 有機ホスフィン、有機ホスフィンオキシド、及び有機ホスフィンの配位化合物のうち、1種又は2種以上が用いられる。これらの硬化触媒の配合量は組成物全体の 0.001~10 重量% の範囲であることが好ましい。

本発明のエポキシ樹脂組成物には、必要に応じて、更に無機質充填剤、離型剤、難燃剤、着色剤、充填剤の表面処理剤、低応力付与剤などを配合しても差し支えない。

無機質充填剤としては、溶融シリカ、結晶性シリカ、ガラス纖維、無機および有機纖維、タルク、

アルミナ、ケイ酸カルシウム、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、マグネシア、窒化ケイ素、窒化ホウ素など、一般に知られているものを用いることができる。離型剤としては、例えば天然ワックス類、合成ワックス類、直鎖脂肪酸の金属塩、酸アミド類、エステル類もしくはパラフィン類などが挙げられる。難燃剤としては、塩素化パラフィン、プロムトルエン、ヘキサプロムベンゼン、三酸化アンチモンなどが挙げられる。着色剤としては、カーボンブラックなどが挙げられる。充填剤の表面処理剤としては、シランカップリング剤などが挙げられる。低応力付与剤としては、シリコーンオイル、シリコーンゴムなどシリコーン化合物、液状ゴム、ABS、MBSなどポリブタジエンの共重合体、ゴム、熱可塑性樹脂エラストマーなどが挙げられる。

以上のような成分を含有するエポキシ樹脂組成物を成形材料として調製するには、一般的に以下のような方法が用いられる。すなわち、原料を所定の組成比に配合し、例えばミキサーによって充

分混合した後、更に熱ロールによる溶融混合処理、又はニーダーなどによる混合処理を加えることにより容易にエポキシ樹脂成形材料を得ることができる。

本発明の樹脂封止型半導体装置は、前記エポキシ樹脂組成物を用いて半導体装置を封止することにより容易に製造することができる。封止の最も一般的な方法は低圧トランスファ成形であるが、インジェクション成形、圧縮成形、注型などによる封止も可能である。

上記以外にも、様々な封止法があり、どれを採用してもよい。たとえばディッピング、ポッシング、コーティング等により半導体チップの表面を被覆する方法は、ICカードや基板上に搭載した裸の素子の封止に適している。

エポキシ樹脂組成物の形状は固形状、粉末状および液状であってもよい。常温で液状でない組成物は加热するか溶剤を加えて液状にすることができる。

また封止に用いるエポキシ樹脂組成物中の成分

は、必須成分以外は任意に調製が可能である。たとえばエポキシ化合物、フェノール化合物および硬化触媒だけから成る組成物であってもよいし、それに充填剤を任意の割合で加えてもよい。その他の成分についても同様である。

エポキシ樹脂組成物は封止の際に加熱されて硬化し、この硬化物によって封止された樹脂封止型半導体装置が得られる。硬化に際しては、150℃以上に加熱することが特に望ましい。また、150～300℃で数時間～数十時間ポストキュアを行うことによって、硬化物の耐熱性などの特性を向上させることができる。ポストキュア温度は好ましくは170℃以上、更に好ましくは200℃以上、ポストキュア時間は好ましくは3～16時間である。

(実施例)

次に本発明の実施例を説明する。なお以下に示す部分は、特にことわらない限りすべて重量部である。

まず、実施例で用いる溶融混合物を予め調製した。

に加熱して相溶させた。相溶後、反応触媒としてトリフェニルホスフィン0.05部を混合した後、冷却して溶融混合物(IV)を得た。

(当量比2/1)

溶融混合物(V)

式(6-1)のエポキシ化合物181部と式(6-2)のフェノール化合物250部を混合し、160℃に加熱して相溶させた。相溶後、反応触媒としてトリフェニルホスフィン0.1部を添加した後、冷却して溶融混合物(V)を得た。

(当量比1/2)

溶融混合物(VI)

式(1-1)のエポキシ化合物300部を150℃に加熱し、次に溶融混合物(IV)100部を加えて相溶させ、溶融混合物(VI)を得た。

溶融混合物(VII)

式(2-1)のエポキシ化合物300部を150℃に加熱し、次に溶融混合物(II)200部を加えて相溶させ、溶融混合物(VII)を得た。

溶融混合物(VIII)

溶融混合物(I)

式(6-1)のエポキシ化合物362部と式(6-2)のフェノール化合物250部を混合し、160℃に加熱して相溶させ、相溶後直に冷却して溶融混合物(I)を得た。(当量比1/1)

溶融混合物(II)

式(6-1)のエポキシ化合物543部と式(6-2)のフェノール化合物250部を混合し、160℃に加熱して相溶させ、10分間保持して反応させた後、冷却して溶融混合物(II)を得た。

(当量比3/2)

溶融混合物(III)

式(6-1)のエポキシ化合物241部と式(6-2)のフェノール化合物250部を混合し、160℃に加熱して相溶させ、10分間保持して反応させた後、冷却して溶融混合物(III)を得た。

(当量比2/3)

溶融混合物(IV)

式(6-1)のエポキシ化合物362部と式(6-2)のフェノール化合物125部を混合し、160℃

式(1-4)のフェノール化合物300部を150℃に加熱し、次に溶融混合物(V)200部を加えて相溶させ、溶融混合物(VIII)を得た。

溶融混合物(V)

式(1-1)のエポキシ化合物300部を150℃に加熱し、次に溶融混合物(I)150部を加えて相溶させ、その後式(1-4)のフェノール化合物180部を加えて相溶させ溶融混合物(V)を得た。

溶融混合物(X)

式(1-9)のエポキシ化合物400部と式(6-1)のエポキシ化合物100部を混合し、160℃に加熱して相溶させ、溶融混合物(X)を得た。

溶融混合物(XI)

式(1-4)のフェノール化合物400部と式(6-2)のフェノール化合物200部を混合し、200℃に加熱して相溶させ、溶融混合物(XI)を得た。

溶融混合物(XII)

式(1-1)のエポキシ化合物300部と式(5-1(ただし $n=2$))のエポキシ化合物100部

を混合し、160℃に加熱して相溶させ、溶融混合物 (XII)を得た。

実施例 1～21

成分(A)に属するエポキシ化合物として、式 [1-1]、[1-5]、[1-9]、[2-1]、[3-1 (n=2)]および[4-1 (n=2)]で示される化合物を用いた。

成分(A)に属するフェノール化合物として、式 [1-4]、[1-6]、[1-10]、[2-5]、[3-2 (n=2)]および[4-2 (n=2)]で示される化合物を用いた。

成分(B)に属するエポキシ化合物として、式 [5-1 (n=1)]、式 [5-1 (n=4)]、[5-2 (n=3)]、[5-5 (n=2)]、[5-10 (p=3.6, m=0.4, l=0)]、[6-1]で示される化合物を用いた。

成分(B)に属するフェノール化合物として、式 [5-3 (n=4)]、[5-6 (n=2)]で示される化合物を用いた。

また成分(B)の組合せから成る前記溶融混合物

(I)～(V)と成分(A)と成分(B)の組合せから成る前記溶融混合物(VI)～(XII)を用いた。

その他のエポキシ樹脂成分としてエポキシ当量200のクレゾールノボラック型エポキシ樹脂を用い、他のフェノール樹脂(硬化剤)成分として水酸基当量107のフェノールノボラック樹脂を用いた。

これらを第1表に示す配合比(重量部)で配合し、それぞれに硬化促進剤としてトリフェニルホスフィン3重量部を加えた後、ミキサーで混合。更に100℃の熱ロールで混練して実施例21種の組成物を調製した。

次に実施例で用いた同じ原材料を用いて、実施例と同一の方法で比較例7種の組成物を調製した。

ただし比較例7は、式[6-1]で表わされるエポキシ化合物(ビスフェノールSのジグリシジルエーテル)の融点が高いために、ロール混練温度(100℃)では十分に相溶せず、不均一な組成物しか得られなかった。

第1表

実施例												
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
[1-1]	150	—	—	—	—	—	—	—	160	—	—	—
[1-5]	—	124	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[1-9]	—	—	125	—	—	—	—	—	—	—	—	178
[2-1]	—	—	—	156	—	—	—	—	—	—	—	—
[3-1]	—	—	—	—	161	—	—	—	—	—	—	—
[4-1]	—	—	—	—	—	134	—	—	—	—	—	—
[1-4]	90	—	—	—	—	—	100	—	—	—	—	—
[1-6]	—	106	—	—	—	—	—	—	—	—	—	114
[1-10]	—	—	95	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[2-5]	—	—	—	96	—	—	—	91	—	—	—	—
[3-2]	—	—	—	—	78	—	—	—	—	—	—	—
[4-2]	—	—	—	—	—	96	—	—	—	—	—	—
[5-1 (n=1)]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[5-1 (n=4)]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[5-2]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[5-5]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[5-10]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[6-1]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[5-3]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
[5-6]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
(A)	(1)	60	—	—	—	—	70	—	—	—	—	—
(B)	(II)	—	70	—	—	—	—	—	—	—	140	—
	(III)	—	—	—	50	—	—	—	—	—	—	300
	(IV)	—	—	80	—	—	—	—	—	—	—	—
	(V)	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	186
	(VI)	—	—	—	—	200	—	—	—	—	—	—
	(VII)	—	—	—	—	—	200	—	—	—	—	—
	(VIII)	—	—	—	—	—	—	200	—	—	—	—
	(IX)	—	—	—	—	—	—	—	300	—	—	—
	(X)	—	—	—	—	—	—	—	—	186	—	—
	(XI)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	122	—
	(XII)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
ノボラック型エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
フェノールノボラック樹脂	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

第三回 亂世の豪傑 (つづき)
第二回 亂世の豪傑 (つづき)

		比 較 例						
		1	2	3	4	5	6	7
成 分 (A)	エボキシ化合物	〔1-1〕	—	180	—	—	—	—
		〔1-5〕	—	207	—	—	—	—
		〔1-9〕	—	—	—	—	—	100
		〔2-1〕	—	—	—	—	—	—
		〔3-1〕	—	—	—	—	—	—
		〔4-1〕	—	—	—	—	—	—
		〔1-4〕	—	93	—	—	—	—
		〔1-6〕	—	—	—	—	—	—
		〔1-10〕	—	—	—	—	—	—
		〔2-5〕	—	—	—	—	—	—
成 分 (B)	エボキシ化合物	〔3-2〕	—	—	—	—	—	—
		〔4-2〕	—	—	—	—	—	—
		〔5-1(n=1)〕	—	—	—	227	80	—
		〔5-1(n=4)〕	—	—	—	—	—	—
		〔5-2〕	—	—	—	—	—	—
		〔5-5〕	—	—	—	250	—	—
		〔5-10〕	—	—	—	—	—	—
		〔6-1〕	—	—	—	—	—	80
		〔5-3〕	—	—	—	—	—	—
		〔5-6〕	—	—	—	—	—	—
成 分 (B)	成 分 (B)	(I)	—	—	—	—	—	—
		(II)	—	—	—	—	—	—
		(III)	—	—	—	—	—	—
		(IV)	—	—	—	—	—	—
		(V)	—	—	—	—	—	—
		(VI)	—	—	—	—	—	—
		(VII)	—	—	—	—	—	—
		(VIII)	—	—	—	—	—	—
		(IX)	—	—	—	—	—	—
		(X)	—	—	—	—	—	—
溶 融 泡 合 物	成 分 (A)	(B)	(VII)	—	—	—	—	—
		(B)	(VIII)	—	—	—	—	—
		(V)	—	—	—	—	—	—
		(VI)	—	—	—	—	—	—
		(VII)	—	—	—	—	—	—
		(VIII)	—	—	—	—	—	—
		(IX)	—	—	—	—	—	—
		(X)	—	—	—	—	—	—
		(XI)	—	—	—	—	—	—
		(XII)	—	—	—	—	—	—
ノボラック改エボキシ樹脂			195	—	—	—	—	1277
			105	—	120	50	73	93
フェノールノボラック樹脂								120

		実施例											
		13	14	15	16	17	18	19	20	21			
成 分 (A)	エボキシ化合物	〔1-1〕	—	—	—	—	—	—	—	—	106	—	—
	エボキシ化合物	〔1-5〕	—	120	—	—	—	—	—	—	108	—	—
	エボキシ化合物	〔1-9〕	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔2-1〕	—	—	149	—	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔3-1〕	—	—	—	143	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔4-1〕	—	—	—	—	122	147	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔1-4〕	—	—	—	—	—	—	74	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔1-6〕	136	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔1-10〕	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	42
	エボキシ化合物	〔2-5〕	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
成 分 (B)	エボキシ化合物	〔3-2〕	—	100	—	—	108	—	—	—	112	—	—
	エボキシ化合物	〔4-2〕	—	—	—	97	—	93	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔5-1(<i>n</i> =1)]	—	—	—	—	—	—	—	—	80	—	—
	エボキシ化合物	〔5-1(<i>n</i> =4)]	—	80	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔5-2〕	—	—	50	—	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔5-5〕	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔5-10〕	—	—	—	—	70	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔6-1〕	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔5-3〕	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—	—
	エボキシ化合物	〔5-6〕	—	—	—	—	—	—	70	—	—	—	—
成 分 (A)	成 分 (B)	(I)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(II)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(III)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(IV)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(V)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(VI)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(VII)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(VIII)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(IX)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	成 分 (B)	(X)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	181	—
ノボラック型エポキシ樹脂	ノボラック型エポキシ樹脂	(XI)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	75
	ノボラック型エポキシ樹脂	(XII)	164	—	—	—	—	—	—	—	—	—	50
			—	—	—	—	—	—	—	—	101	—	—

得られた各エポキシ樹脂組成物を用いてトランジスタ成形を行い、硬化物を得た。成形条件は金型温度180°C、成形時間3分である。また、ポストキュアは180°Cで5時間実施した。

得られた硬化物の高温(200°C)における韌性を評価するために、曲げ試験(200°C)における応力-歪曲線の積分値を求めた。この積分値が大きいほど、韌性が大きい。

また耐熱性を評価するために、硬化物の動的粘弾性の温度分散を測定し、200°Cにおける弾性率(E')を求めた。弾性率が高いほど耐熱性が優れている。

次に、前記各エポキシ樹脂組成物を、それぞれ溶融シリカ粉体(充填剤)700部、三酸化アンチモン(難燃剤)20部、カーボンブラック(着色剤)4部、カルナバワックス(離型剤)4部、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(シランカップリング剤)4部とともにミキサーで混合し、100°Cの熱ロールで3分間混練することにより、充填剤入り成形材料を調製した。

得られた各成形材料を用い、トランジスタ成形により、高周波予熱器で90°Cに加熱した成形材料を180°Cで3分間モールドしてMOS型集積回路(半導体チップのサイズは15mm×12mm)を樹脂封止した。更に、180°C、5時間のポストキュアを実施した。樹脂パッケージは厚さ2mmのフラットパッケージ形である。これらの試料について、以下に記す評価試験を行った。

(a)封止した樹脂パッケージ各20個について、熱サイクル試験を行った。熱サイクル試験は-65°C、200°Cに各30分間交互に100回繰り返した後、パッケージを切断し、内部に樹脂クラックが発生しているかどうか調べた。

(b)ベーパーフェーズ(VPS)法⁶により、215°Cでリフローはんだ付けを行い、パッケージの外観に樹脂クラックが認められるかどうか調べた。

(c)(b)のVPS終了後の樹脂パッケージについて、121°C、2気圧のプレッシャック⁷内で耐温試験を行い、200時間後の半導体チップのコロ

ーション不良の発生を調べた。

以上の評価結果をまとめて第2表に示した。

(以下余白)

第2章

	積分値 (200°C)	弾性率 [MPa] (200°C)	熱サイクル試験		はんだ付試験 試験 故障数 試料数	耐湿性試験 試験 故障数 試料数
			放電数	試料数		
実験例 1	3.66	880	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 2	3.68	890	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 3	3.69	890	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 4	3.82	870	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 5	3.82	880	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 6	3.67	880	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 7	3.66	940	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 8	3.65	940	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 9	3.72	910	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 10	3.84	930	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 11	1.93	580	1/20	5/20	2/20	2/20
〃 12	1.85	560	1/20	6/20	2/20	2/20
〃 13	3.47	820	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 14	3.09	730	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 15	3.07	720	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 16	2.88	670	0/20	1/20	0/20	0/20
〃 17	3.08	730	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 18	3.02	700	0/20	0/20	0/20	0/20
〃 19	2.81	650	0/20	1/20	0/20	0/20
〃 20	2.54	610	0/20	2/20	1/20	1/20
〃 21	3.50	850	0/20	0/20	0/20	0/20
比較例 1	0.49	170	16/20	20/20	20/20	20/20
〃 2	0.82	520	13/20	18/20	20/20	20/20
〃 3	0.66	460	16/20	20/20	18/20	18/20
〃 4	0.10	50	17/20	20/20	20/20	20/20
〃 5	0.15	70	17/20	20/20	20/20	20/20
〃 6	0.56	180	15/20	19/20	19/20	19/20
〃 7	0.37	310	16/20	20/20	20/20	20/20

〔発明の効果〕

以上詳述したように、本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は韧性、耐熱性が優れており、これらを用いた樹脂封止型半導体装置は信頼性が高い。したがって、本発明の工業的価値は極めて大きい。

代理人 弁理士 則近憲佑

同 松山尤之